

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/004815

International filing date: 17 March 2005 (17.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-079787
Filing date: 19 March 2004 (19.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 20 May 2005 (20.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application: 2004年 3月19日

出願番号 Application Number: 特願2004-079787

パリ条約による外国への出願に用いる優先権の主張の基礎となる出願の国コードと出願番号

The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

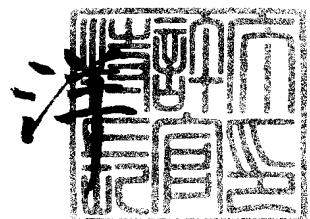
出願人 Applicant(s): 電気化学工業株式会社

J P 2004-079787

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

2005年 4月27日

小川



【書類名】 特許願
【整理番号】 A106510
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 B23K 1/19
C04B 35/58
B01F 3/12
B29K 1/00
B29K 33/04

【発明者】
【住所又は居所】 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内
【氏名】 寺尾 亮

【発明者】
【住所又は居所】 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内
【氏名】 福田 誠

【発明者】
【住所又は居所】 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内
【氏名】 吉野 信行

【特許出願人】
【識別番号】 000003296
【氏名又は名称】 電気化学工業株式会社
【代表者】 畫間 敏男

【手数料の表示】
【予納台帳番号】 028565
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 3
【物件名】 要約書 1

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給口を連結させた押出成形機を用いて、厚みが1～10mmのセラミックシートを成形することを特徴とするセラミックシートの製造方法。

【請求項 2】

2軸押出機の混練部が、2軸押出機の30～70体積%を占めることを特徴とする請求項1記載のセラミックシートの製造方法。

【請求項 3】

(1) セラミックス粉末、焼結助剤及び有機バインダー粉末からなる混合粉末を2軸押出機の粉末供給部より供給し、(2) 液状の有機バインダー、離型剤及び可塑剤からなる液体を2軸押出機の液体供給部より供給し、(3) 2軸押出機内の混練部にて混合粉末と液体を混練し、(4) シートダイスを取り付けた1軸成形機によりシート成形を行うことを特徴とする請求項1又は2記載のセラミックシートの製造方法。

【請求項 4】

セラミックス粉末が窒化物セラミックス、焼結助剤粉末が希土類酸化物、有機バインダー粉末がセルロース系又はアクリル系バインダー、液状の有機バインダーがアクリル系バインダーであることを特徴とする請求項3記載のセラミックシートの製造方法。

【請求項 5】

窒化物セラミックスが窒化アルミニウムであり、シートの見掛け密度が 2.5 g/cm^3 以上であることを特徴とする請求項4記載のセラミックシートの製造方法。

【請求項 6】

請求項1～5のうちいずれか一項記載の方法により製造されたセラミックスシートに、脱脂及び焼結処理を施してなるセラミックス基板。

【請求項 7】

請求項6記載のセラミックス基板の一主面に金属回路を形成し、他の一主面に放熱板を接合してなるモジュール用セラミックス回路基板。

【請求項 8】

請求項7記載のセラミックス回路基板を用いてなるモジュール。

【書類名】明細書

【発明の名称】セラミックスシートの製造方法、それを用いたセラミック基板及びその用途

【技術分野】

【0001】

本発明は、セラミックスシートの製造方法、それを用いたセラミックス基板及びその用途に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、回路基板は、半導体搭載用セラミックス基板の正面に導電性を有する金属回路をロウ材で接合し、金属回路の所定位置に半導体素子を搭載したものが用いられている。回路基板の高信頼性を保つには、半導体素子が発生する熱を放熱し、半導体素子の温度が過度に上昇しないようにすることが必要であり、セラミックス基板には、電気絶縁性に加えて、優れた放熱特性が要求される。近年、回路基板の小型化、パワーモジュールの高出力化が進む中、小型軽量化モジュールに関して、電気絶縁性が高く、高熱伝導性を有する窒化アルミニウム（以下、AINと記載）焼結体を用いるセラミックス基板、並びにAIN基板の正面に金属回路を形成したセラミックス回路基板が注目されている。

【0003】

セラミックス基板となるセラミックス焼結体は、一般に以下の方法で製造される。即ち、セラミックス粉末に焼結助剤、有機バインダー、可塑剤、分散剤、離型剤等の添加剤を適量混合し、それを押出成形やテープ成形によって薄板状又はシート状に成形する。一方、厚板状又は大型形状の場合は、押出成形やプレスにより成形される（本発明では、厚さ1mm未満を薄板、それ以上を厚板とする）。次いで、成形体を空気中、又は窒素等の不活性ガス雰囲気中で、450～650℃に加熱して有機バインダーを除去した後（脱脂工程）、窒素等の非酸化性雰囲気中で、1600～1900℃で0.5～10時間保持すること（焼成工程）によって製造される。

【0004】

一般に、押出成形法を用いることで、成形厚みの制限を無くすことができ、薄板及び厚板のセラミックシート成形が可能である。まず、万能混合機、ライカイ機、ミキサー、振動篩機等を用いて、予めオレイン酸処理したセラミックス粉末と焼結助剤と有機粉末バインダーからなる混合粉末を調製する。この混合粉末に、水、有機液体バインダー、離型剤及び可塑剤等からなる混合液体を噴霧し、万能混合機、ライカイ機、ミキサー、振動篩機等を用いて顆粒状の湿紛原料を作製する（顆粒化工程）。次に、この湿紛からなるオレイン酸処理したAIN粉末とバインダー水溶液を馴染ませるため、2～3日間低温にて放置する（寝かせ工程）。この原料を混練機の原料供給口に投入し、練土を調製した後（混練工程）、さらに、2～3日間低温にて放置し、練土粘度を低粘度化させる。この練土をダイスが設置された1軸押出成型機の原料供給部に投入し、厚板状又はシート状に成形する（特許文献1、特許文献2）。

【特許文献1】特開平2-83265号公報

【特許文献2】特開平9-177113号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

上記製造方法は、原料の顆粒化（顆粒工程）および練土の均一化（混練および寝かせ工程）を必要とするリードタイムの長い生産方式である。さらに、この練土の均一化が不十分であると、グリーンシートの密度ムラが生じ、焼成後のセラミックス焼結体が変形するという課題がある。本発明の目的は、従来と同等もしくはそれ以上の品質が得られ、しかも生産効率の良好なセラミックシートの製造方法、及びそれを用いたセラミックス基板を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0006】

即ち、本発明は、2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給口を連結させた押出成形機を用いて、厚みが1～10mmのセラミックシートを成形することを特徴とするセラミックシートの製造方法であり、2軸押出機の混練部が、2軸押出機の30～70体積%を占める該セラミックシートの製造方法であり、(1)セラミックス粉末、焼結助剤及び有機バインダー粉末からなる混合粉末を2軸押出機の粉末供給部より供給し、(2)液状の有機バインダー、離型剤及び可塑剤からなる液体を2軸押出機の液体供給部より供給し、(3)2軸押出機内の混練部にて混合粉末と液体を混練し、(4)シートダイスを取り付けた1軸成形機によりシート成形を行うことを特徴とする該セラミックシートの製造方法であり、セラミックス粉末が窒化物セラミックス、焼結助剤粉末が希土類酸化物、有機バインダー粉末がセルロース系あるいはアクリル系バインダー、及び液状の有機バインダーがアクリル系バインダーである該セラミックシートの製造方法であり、窒化物セラミックスがAlN、シートの見掛け密度が2.5g/cm³以上である該セラミックシートの製造方法である。

【0007】

又、上記方法により製造されたセラミックスシートに、脱脂及び焼結処理を施してなるセラミックス基板であり、該セラミックス基板を用いたモジュール用セラミックス回路基板であり、さらに、該セラミックス回路基板を用いたモジュールである。

【発明の効果】

【0008】

本発明により、従来法と同等もしくはそれ以上の品質が得られ、しかも生産効率の良好なセラミックシートの製造方法が提供され、さらに、セラミックス基板の製造、並びに、モジュールへの適用が可能である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0009】

本発明者は、セラミックスシートを製造するため、ドクターブレード法、押し出し成型法、乾式プレス法、射出成型法、スリップキャスト法について検討した。

【0010】

乾式プレス法及び射出成型法は、バインダー量が多くなるため焼成時の収縮率が大きくなり、寸法精度が取れず、焼結体を研磨加工して放熱板とする必要がある。スリップキャスト法は、少ロットの異形品向きで量産性に劣り、厚みが厚い成形体は幅方向および流れ方向に厚みムラが生じやすい。

【0011】

ドクターブレード法によれば、厚み0.5～1mmの成型品は可能であるが、厚みが1mm程度を越えると厚みムラが大きくなり、特に端部と中心部の厚み差が40μm以上になることもあり、大きな反りを生じるようになる。更に、厚みの厚いものは、シート成形後に有機溶剤を乾燥・除去する際、蒸発する有機溶剤によって表面が荒れたりピンホールが発生し、放熱板としては不適となる。

【0012】

これに対し、押出成形法は、ダイスのクリアランスを大きくするだけで容易に厚みの厚いシートを成形することができ、しかも成形圧力を5～10MPaと高くすることができるため、成形体密度を上げることが可能で、焼成時の寸法精度が良好である。

【0013】

本発明に係る、2軸押出機と1軸押出機を組合せた押出成形機を図1に示す。

【0014】

2軸押出機の混練部は、押出機の仕様に応じて適宜決められるが、2軸押出機の30～70体積%を占めるのが一般的である。ここで、Dはスクリュー径、Lはスクリュー長さである。混練部が30体積%未満であると、混練不足が生じてセラミックスシートの密度バラツキを誘発する場合があり、一方、70体積%を超えると、過剰混練により練土の発熱が著しくなり、配合ズレや水分蒸発に伴う流動性の低下が生じ、安定した品質のシートを得

られない場合がある。2軸押出機のスクリュー構成に関して特に制限は無いが、練土の均一混練性を考慮して選択することが好ましい。

【0015】

スクリュー回転数は、スクリュー構成に応じて適宜決められるが、50～200 rpmが一般的である。回転数が50 rpm未満では所望の吐出量が得らないため、生産性が低下する場合があり、一方、200 rpmを超えると練土の発熱が著しくなり、バインダー溶液の水分蒸発に伴う流動性の低下が生じるため、安定したシート品質が得られない場合がある。2軸押出機の混練により練土中に包括された気泡を消滅させるために、混練部からストランドダイス間で真空引きを行う。このとき、真空度は絶対圧力表示にて1332.2 Pa以下の真空雰囲気に保たれる。2軸押出機は冷却用チラーユニットに接続され、2軸押出機からの吐出物温度は5～15°Cに調節される。

【0016】

本発明に係る2軸押出機の特徴は、(1) 2軸スクリュー間の噛み合い部において、1軸成形機よりも高いせん断応力を負荷でき、短時間で均一に混練された練土が得られる。(2) 2軸スクリューは複数のバーツからなり、材料に応じて組み替えられるため混練の自由度が大きく、シート流れ方向とシート幅方向の密度バラツキを低減させることが可能である。さらに、焼結してセラミック基板とする際は、押出方向に依存しない等方的な収縮性能を発現することから、セラミック基板の寸法および変形不良を低減させることができる。

【0017】

練土の成分が均一で、良好な成形性が得られる場合の粘度は、降下式フロースターでせん断応力を0.3 MPaとした場合、2000～3000 Pa·secであり、シート断面の輪郭形状はフラットとなる。粘度が2000 Pa·sec未満であると、シート幅方向において厚みムラが発生し、焼成後のセラミック基板の寸法不良や変形が生じる場合がある。一方、粘度が3000 Pa·secを超えると、シート断面の輪郭形状はフラットになるが、シート表面の流れ方向にフローマークが著しく現れるため、焼成後のセラミック基板表面の外観が損なわれる場合がある。

【0018】

1軸成形機のスクリュー径Dおよびスクリュ長さLに関して特に制約は無いが、1軸成形機のスクリュー径Dは2軸押出機以上にすることが好ましい。1軸成形機の回転数は吐出量に比例するため、30～100 rpmが好ましい。回転数が30 rpm未満では、所望の吐出量が得られず生産性が低下する。一方、100 rpmを超えると練土の発熱が著しくなり、溶液中の水分蒸発に伴う流動性の低下が生じるため、安定した品質のシートが得られない場合がある。1軸成形機の混練部は、2軸押出機にて十分混練されているため不要である。1軸成形機は冷却用チラーユニットに接続され、1軸成形機からの吐出物温度は5～15°Cに調節される。

【0019】

2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給部の接続部は図1の様に設置される。この箱状容器(真空室)は、材質に制限はないが透明な容器であり、高真空下でも破損しないことが必要である。練土の表面に気泡が混入し密度低下を起こさぬよう、容器内は絶対圧力表示にて1332.2 Pa以下の真空度に保たれる。2軸押出機及び1軸成形機と、容器の界面は真空漏れが生じないように、樹脂やゴムパッキン等のシール材が用いられる。2軸押出機の吐出口から吐出された練土は、その直下の1軸成形機の練土供給口に設置されたニーダーにより、1軸成形機内に搬送される。

【0020】

本発明に係る1軸成形機の特徴は、原料供給系に起因する圧力変動が2軸押出機よりも小さく、2軸押出機のシート流れ方向の厚みバラツキがR>5 μmなのに対し、1軸成形機ではR≤5 μmと吐出安定性に優れる。シート流れ方向の厚みバラツキがR>5 μmでは、焼成後のセラミック基板幅方向の反り量が80 μm以上となるため、金属回路板側および金属放熱板側との接合に不具合を発生させる場合がある。

【0021】

本発明において、2軸押出機と1軸成形機を組み合せた理由は、両機の欠点を補い、優れた特徴を活かすためである。2軸押出機の原料供給部は図1に示す通り、粉末と液体用の2箇所からなり、粉末および液体供給はウエイトロス式の粉末フィーダーを用い、液体供給部へは吐出脈動の少ないウエイトロス式モノポンプあるいはウエイトロス式チューブポンプ等を用いて原料供給を行うことが好ましい。ここで重要なのは、粉末および液体のフィードバラツキを $| \pm R\% | \leq 1$ 以内に制御し、且つ粉末フィーダーと液体添加ポンプの吐出を同調化させることである。ここで、 $\pm R\%$ は(1)および(2)式から算出した。

【0022】

【数1】

$$R = \max(x_i) - \min(x_i) \quad \text{式(1)}$$

ここで、 X_i は*i*回測定したときの吐出量である。

【0023】

【数2】

$$\pm R\% = \frac{\left(\frac{R}{\bar{x}_i} \times 100 \right)}{2} \quad \text{式(2)}$$

ここで、

【数3】

\bar{x}_i は吐出量の平均値である。

【0024】

バラツキが $| \pm R\% | \leq 1$ を外れると、粉末と液体の配合比率がズレ、練土が均一成分とならないため、グリーンシートの密度バラツキが生じることから、焼成後のセラミックス基板に著しい変形が生じる場合がある。

【0025】

本発明に係るAIN粉末は、直接窒化法、アルミナ還元法等の公知の方法で製造された粉末が使用できるが、酸素量3質量%以下、平均粒径 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下のものを用い、加水分解を防止するためにステアリン酸、オレイン酸、リン酸等で表面処理することが好ましい。特に、表面処理剤はオレイン酸が好ましく、その使用割合はAIN粉末100質量部に対して、0.5~3質量部が好ましい。3質量部を超えると、オレイン酸の撥水作用により練土の流動性が低下し、成形性が損なわれる場合がある。

【0026】

本発明に係る焼結助剤は、希土類金属、アルカリ土類、及びアルミニウム酸化物、フッ化物、塩化物、硝酸塩、硫酸塩等が使用可能である。中でも、イットリウム酸化物等の希土類酸化物を助剤とし、これとAIN粉末の表面酸化膜であるアルミニウム酸化物との液相反応により、AINの焼結を促進させることが一般的である。本発明では、希土類酸化物の他に、さらにアルミニウム酸化物を併用し、焼成温度を低下させることはより好ましい。焼結助剤の使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して1~5質量部が好ましい。1質量部未満であったり、或いは、5質量部を超えると、焼結しにくくなり、高密度な焼結体が得られない場合がある。アルミニウム酸化物の使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して1~5質量部が好ましい。1質量部未満であったり、或いは、5質量部を超えると、AIN基板の熱伝導率が低下する場合がある。

【0027】

本発明に係る液状の有機バインダーは特に限定されないが、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、アクリル酸、及びメタクリル酸からなる群より選ばれた一種又は二種以上を重合してなるポリマーを含む有機バインダーを用いることが好ましい。この有機液体バインダーを用いる理由は、窒素等の不活性ガス雰囲気中の脱脂処理にて、他のバインダーよりも熱分解性が良く、残留炭素分の制御を容易に行うことができるからである。酸化雰囲気中で脱脂処理すると、A1N脱脂体中の酸素量が増加し、焼結の際にA1N格子内に酸素が固溶してA1N焼結体の熱伝導率を低下させる場合がある。上記ポリマーのガラス転移温度は、-50～0℃であることが好ましい。ポリマーのガラス転移温度が-50℃より低いと、十分な成形体強度が得られず、成形が困難となる場合があり、一方、ガラス転移温度が0℃より高いと成形体が硬く、脆いものとなり、割れが発生しやすくなる場合がある。

【0028】

液体の有機バインダーの添加割合は、セラミックス粉末に対して外割配合で0.5～30質量%が好ましく、1～10質量%がより好ましい。0.5質量%より少ないと、十分な成形体強度が得られず、割れを生じる場合があり、一方、30質量%を超えると、脱脂処理に多大な時間がかかる上に、脱脂体中の残留炭素量が多いため、焼結体基板に色むらが生じる場合がある。

【0029】

本発明に係る有機バインダー粉末は特に限定されないが、可塑性および界面活性効果を有するメチルセルロース系あるいはアクリル系等の使用が可能である。有機バインダー粉末の使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して1～5質量部が好ましい。1質量部より少ないと、十分な成形体強度が得られず、割れを生じる場合がある。一方、5質量部を超えると、脱脂時のバインダー除去の際に成形体密度が低下するため、焼結時の収縮率が大きくなり、寸法不良や変形を生じる場合がある。

【0030】

本発明において、上記成形体の加熱脱脂処理後の残留炭素分は、2.0質量%以下が好ましい。残留炭素分が2.0質量%を超えると、焼結を阻害して緻密な焼結体が得られなくなる場合がある。

【0031】

本発明に係る可塑剤としては、精製グリセリン、グリセリントリオレート、ジエチレングリコール等が使用可能であり、その使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して2～5質量部が好ましい。2質量部未満だと成形シートの柔軟性が不十分なため、プレス成形時に成形体が脆くなるため、シートへ亀裂が入りやすくなる。一方、5質量部を超えると練土粘度が低下し、シート形状の保持が困難になるため、シート幅方向の厚みムラを生じる場合がある。

【0032】

本発明に係る離型剤は特別に限定されないが、ステアリン酸系やシリコン系等が使用可能であり、その使用量はセラミックス粉末100質量部に対して2～5質量部が好ましい。2質量部未満であると2軸押出機と1軸成形機間に設置された練土供給ニーダーに付着し、練土供給に支障をきたして生産性を低下させるだけでなく、練土性状の劣化に起因したシート厚みムラが生じる場合がある。一方、5質量部を超えると練土粘度が低下し、シート形状の保持が困難になるため、シート幅方向の厚みムラが生じる場合がある。

【0033】

本発明では、必要に応じて、さらに分散剤を配合することも可能である。

【0034】

本発明に係る溶媒としては、エタノールやトルエン等の使用が挙げられるが、地球環境への配慮及び防爆設備対応を考慮して、イオン交換水又は純水を使用するのが一般的である。使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して1～15質量部が好ましい。1質量部未満だと練土粘度の流動性が悪いため、シート成形に支障をきたす場合がある。一方、

15 質量部を超えると、練土粘度が低下し、シート形状の保持が困難になるため、シート幅方向の厚みムラが生じる場合がある。

【0035】

本発明の成形機を用いることにより、グリーンシートの見掛け密度が 2.5 g/cm^3 以上にすることが可能である。これにより、焼成後のAlN焼結体において収縮率を約12%以下にすることが出来、焼成時の収縮に伴う寸法不良や変形不良が低減できる。グリーンシートの見掛け密度が 2.5 g/cm^3 未満だと収縮率が大きく、寸法不良や変形不良が発生し易い。

【0036】

板状のAlN焼結体の一主面に金属回路用の金属板を、他の主面に放熱板用の金属板を接合した後、回路面にエッティングレジストを印刷する際、突き当てを用いて位置決めを行うが、寸法不良や変形不良により、AlN基板の長手・短手方向寸法および形状が適性でないと回路パターンの印刷ズレを生じさせ、後工程であるモジュール組立工程において、ワーチャーボンディング設置位置が不適当になり、電気的特性の劣化を生じさせる場合がある。

【0037】

本発明により製造されたAlN焼結体は、機械的特性に優れ、且つ、高い熱伝導率を有するので、厳しい使用条件下で用いられる回路基板、例えばパワーモジュール用回路基板に好適な材料である。本発明のセラミックス回路基板は、AlN焼結体を用いた基板の一主面に金属回路、他の主面に放熱板を形成してなるものである。

【0038】

本発明に係るセラミックス基板の厚みは特に限定されるものではなく、例えば、放熱特性を重視する場合は $0.3 \sim 1.0 \text{ mm}$ 程度、高電圧下での絶縁耐圧を著しく高めたい場合は $1 \sim 3 \text{ mm}$ 程度のものを用いるのが一般的である。

【0039】

金属回路と金属放熱板の材質はAl、Cu、またはAl-Cu合金であることが好ましい。これらは単層ないしはこれを一層として含むクラッド等の積層体の形態で用いることが可能である。中でも、AlはCuよりも降伏応力が小さいため塑性変形し易く、ヒートサイクル等の熱応力負荷が掛かった際に、セラミックス基板に加わる熱応力を大幅に低減することができる。そのため、AlはCuよりも、金属回路とセラミックス基板間に発生する水平クラックが発生しにくく、より高信頼性モジュールの作製が可能である。

【0040】

金属回路の厚みは、特に限定されるものではないが、電気的および熱的仕様からAl回路は $0.1 \sim 0.5 \text{ mm}$ 、Cu回路は $0.1 \sim 0.5 \text{ mm}$ が一般的である。一方、放熱板は、半田付け時に反りを生じない厚みにする必要があり、例えば、Al放熱板は $0.1 \sim 0.5 \text{ mm}$ 、Cu放熱板は $0.1 \sim 0.5 \text{ mm}$ が一般的である。

【0041】

本発明に係るセラミックス回路基板は、板状のAlNまたは研削加工により板状に加工したAlN焼結体を基板とし、金属板を接合した後、エッティング等の手法により回路を形成させるか、或いは、予め形成した金属回路を、接合することにより製造することが可能である。板状のAlN焼結体または研削加工により板状に加工したAlN焼結体と金属板又は金属回路との接合は、例えば、Al-Cu、Ag、Cu、またはAg-Cu合金と、Ti、Zr、Hf等の活性金属成分を含むロウ材を介在させ、不活性ガスまたは真空雰囲気中で加熱する方法（活性金属法）

により可能である。

【実施例1】

【0042】

〈実験No. 1～3〉

振動篩機を用いて予めオレイン酸で表面処理したAlN粉末100質量部、有機バインダー粉末3質量部、Al₂O₃2質量部、及びY₂O₃4質量部をボールトン混合機により

乾式混合し、2軸押出機と1軸成形機を組合せた強混練型成形機の粉末供給口に、定量粉末フィーダー（供給バラツキ<1%）を用いて25.8 kg/h供給した。また、AlN粉末100質量部に対して、有機液体バインダーが外割で7質量%、可塑剤が3質量部、離型剤が2質量部、イオン交換水が4質量部となるように、同押出機の液体供給口へ定量液体モノポンプ（供給バラツキ<1%）を用いて4.2 kg/h供給した。2軸押出機はD=46 mm、L=1840 mm ($L/D = 40$)、混練部は70体積% ($D = 46 \text{ mm}$ 、 $L = 1288 \text{ mm}$)、スクリュー回転数100 rpm、真空度は絶対圧力で666.6 Paであった。また、2軸押出機と1軸成形機間の真空室の真空度は666.6 Paであった。1軸成形機はD=70 mm、L=700 mmからなる装置を用い、スクリュー回転速度60 rpmの運転条件（吐出量30 kg/h）にて、シートダイを用いて、巾100 mm×厚み1.174 mmの帯状のシート成形を行った。成形条件を表1に、成形されたシートの物性を表2に記す。

【0043】

同機により成形されたグリーンシートをベルト式乾燥機を用いて乾燥した後、金型付プレス機により70×50 mm×1.174 mmの寸法に調整した。これを窒化ホウ素製の坩堝に充填して、常圧下、窒素雰囲気中にて600°Cで4時間保持して脱脂した後、カーボンヒーター電気炉を用いて、絶対圧力0.1 MPaの窒素雰囲気下で1800°C、2時間焼結してAlN焼結体を作製した。得られたAlN焼結体の物性を表2に示す。

【0044】

〈使用材料〉

- ・AlN粉末：D50の粉末粒径3.0 μm、純度99.9%、不純物含有量は鉄が40 ppm、シリコン100 ppm。表面処理は、AlN粉末100質量部に対して、オレイン酸を1.5質量部添加した。
- ・Al₂O₃：アドマテックス社製、商品名「AO-500」、D50の粉末粒径1.0 μm、純度99.9%。
- ・Y₂O₃：信越化学工業株式会社製、商品名「Yttrium Oxide」、D50の粉末粒径1.0 μm、純度99.9%。
- ・有機液体バインダー：ユケン工業株式会社製、商品名「セランダー」、主成分アクリル酸エステル、ガラス転移温度-20°C。
- ・有機バインダー粉末：ダイセル化学工業株式会社製、商品名「CMCダイセル」、主成分カルボキシメチルセルロース。
- ・可塑剤：花王社製、商品名「エキセパール」、主成分グリセリン。
- ・離型剤：サンノプロコ社製、商品名「ノプロセラLU-6418」、主成分ステアリン酸。
- ・アルミニウム板：三菱アルミニウム株式会社製、商品名「1085材」（対応JIS番号）。
- ・ロウ合金箔：東洋精箔株式会社製、商品名「A2017R-H合金箔」（対応JIS番号）。
- ・UV硬化型レジストインク：互応化学工業株式会社製、商品名「PER-27B-6」。

【0045】

【表 1】

実験No.	原料性状	2軸押出機の混練部体積率 %	吐出量 kg/h	成形	備考
1	粉末と液体	70	30	2軸押出機と1軸成形機の組合せ	実施例
2	粉末と液体	80	30	2軸押出機と1軸成形機の組合せ	実施例
3	粉末と液体	30	30	2軸押出機と1軸成形機の組合せ	実施例
4	粉末と液体の混合粉	70	20	2軸押出機と1軸成形機の組合せ	実施例
5	粉末と液体	0	30	2軸押出機のみ	比較例
6	粉末と液体の混合粉	0	30	1軸押出機のみ	比較例
7	粉末と液体	70	30	2軸押出機と1軸成形機の組合せ	実施例

【0046】

【表2】

実験 No.	シート物性			焼結体物性						抗折強度 MPa
	ダイス部で の練土粘度 Pa·sec	シート幅 方向厚み R μm	シート密度 g/cm^3	原料調製工 程からシー ト化までの day	焼結体密度 g/cm^3	収縮率 %	L方向変形 率 %	W方向 変形率 %	反り量 μm	
1	2200	5	2.7	0.5	3.3	11	0.12	0.12	20	175
2	3500	7	2.7	0.5	3.3	11	0.12	0.12	40	170
3	3000	5	2.6	0.5	3.1	13	0.14	0.14	40	170
4	2500	10	2.4	8.0	3.1	11	0.17	0.17	80	160
5	15000	15	1.5	0.5	2.5	16	0.20	0.20	150	140
6	5000	10	2	8.0	3.0	12	0.15	0.15	40	150
7	2200	5	2.7	0.5	3.3	11	0.12	0.12	20	170
										500

【0047】

得られたAlN焼結体の回路基板としての性能を評価するため、金属回路及び金属放熱板としてアルミニウム板を以下の方法にて接合し、回路パターンを形成した。

【0048】

AlN焼結体の両面に $70 \times 50 \text{ mm} \times 0.2 \text{ mm}$ tのロウ合金箔を貼付け、さらにその両面から $70 \times 50 \text{ mm} \times 0.2 \text{ mm}$ tのアルミニウム板を挟み、それを10枚積層したものをカーボン治具にカーボンネジ締めにより設置した後、620°Cで2時間保持してAlN焼結体とアルミニウム板を接合した。接合体の一主面には所定の形状の回路パターンを、もう一方の主面には放熱板パターンを形成させるべく、UV硬化型レジストインクをスクリーン印刷した後、UVランプを照射させてレジスト膜を硬化させた。次いで、レジスト塗布した部分以外を水酸化ナトリウム水溶液でエッチングした後、フッ化アンモニウム水溶液にてレジスト剥離し、図3に記載したようにアルミニウム回路AlN基板を作製した。

【0049】

得られた回路基板の信頼性を評価するため熱履歴衝撃試験を実施し、1) パターン印刷ズレの有無、2) 断面観察による回路面及び放熱板面とAlN基板間の接合クラック発生の有無、3) 回路および放熱板部分を溶解後、インクテストによる窒化アルミニウム基板のクラック発生の有無確認を確認した。結果を表3に示す。ここで、接合クラック発生の有無は、熱履歴衝撃試験を実施し、2000サイクル未満にて接合クラックが発生した場合を記号1、2000～3000サイクルにて接合クラックが発生した場合を記号2、3000サイクルでも接合クラックが発生しない場合を記号3とした。回路基板としての信頼性保証基準は記号2以上である。結果を表3に示す。

【0050】

【表3】

実験No.	印刷パターンズレの有無	接合部クラックの有無	基板クラックの有無	備考
1	無し	3	無し	Al回路板、Al放熱板
2	無し	2	無し	Al回路板、Al放熱板
3	無し	3	無し	Al回路板、Al放熱板
4	有り	2	無し	Al回路板、Al放熱板
5	有り	1	有り	Al回路板、Al放熱板
6	無し	2	有り	Al回路板、Al放熱板
7	無し	2	無し	Cu回路板、Cu放熱板

【0051】

<測定方法>

- ・熱履歴衝撃試験：（-25°C、10分→室温、10分→125°C、10分→室温、10分）を1サイクルとして、3000サイクルのヒートサイクルに供試体を晒す試験。
- ・練土粘度：降下式フロー テスターにより、せん断応力0.3 MPa時の粘度を測定した。
- ・シート厚みバラツキR：マイクロメーターを用いて、シート幅方向の他端から5mm間隔で厚みを測定し、(3)式より求めた。

【0052】

【数 4】

$$R = \max(y_i) - \min(y_i) \quad \text{式(3)}$$

ここで、 y_i は i 回測定したときのシート厚みである。

・シート密度：金型プレス後の成形体を用いて（4）式より求めた。

【0053】

【数 5】

$$\rho_{sheet} = \frac{W_{sheet} - W_{liquefied}}{l \times w \times t} \quad \text{式(4)}$$

ここで、 W_{sheet} は成形体重量、 $W_{liquefied}$ は 100°C、1 時間乾燥後の含水除去した成形体重量、 l はシート長手方向距離、 w は短手方向距離、 t 成形体厚み。

・焼結体の収縮率：（5）式より求めた。

【0054】

【数 6】

$$S(\%) = \frac{l_{sheet} - l_{interedbody}}{l_{sheet}} \times 100 \quad \text{式(5)}$$

ここで、 S は L 方向の収縮率（%）、 l_{sheet} は成形体の長手方向長さ、 $l_{interedbody}$ は焼結体の長手方向長さ。

【0055】

シート化までの日数内訳を以下に記す。粉末と液体の調製に要する日数：0.5 日、粉末と液体の混合調製に要する日数：0.5 日、混合品の寝かせに要するに日数：3 日、混合品の混練に要する日数：1 日、混練品の寝かせに要するに日数：3 日とした。

・焼結体の L 方向および W 方向変形率：（6）式より求めた。

【0056】

【数 7】

$$l_{yieldrate}(\%) = \frac{(l_{center} - l_{end})}{l_{center}} \times 100 \quad \text{式(6)}$$

ここで、 $l_{yieldrate}$ は長手方向の変形量であり、+ 符号の場合は長手方向中央部が端部より長く、- 符号の場合は長手方向中央部が端部より短い、 l_{center} は長手方向中央部の長さ、 l_{end} は長手方向端部の長さ。W 方向変形率は同式を用いて算出する。

・焼結体密度：アルキメデス法により（7）式から算出した。

【0057】

【数 8】

$$\rho = \frac{W_1 \rho_E}{(W_2 - W_3)} \quad \text{式(7)}$$

ここで、 ρ は嵩密度、 W_1 は空气中での焼結体の質量、 W_2 は焼結体の開気孔にブタノールが含浸したときの空气中における焼結体の質量、 W_3 はブタノール中での焼結体質量、 ρ_E は密

度測定時（25°C）のブタノールの密度：0.8048 g/cm³である。

・焼結体の抗折強度：下部スパン30 mm、クロスヘッド速度0.5 mm/分の条件にて3点曲げ試験（JIS R1601）を行い、その破壊荷重を（8）式により求めた（n=10）。

【0058】

【数9】

$$\sigma_f = \frac{3P_f L}{2bh^2} \quad \text{式(8)}$$

ここで、 σ_f は抗折強度、 P_f は破壊荷重、 b は試験片の幅、 h は試験片の厚さ、 L は下部スパン長さである。

・焼結体の熱伝導率：AlN基板表面にカーボンスプレー処理を施し、レーザーフラッシュ法にて測定した。

・焼結体の反り量：株式会社東京精密社製触針式輪郭測定器「CONTOURECORD 1600D」を用いて測定した。

【実施例2】

【0059】

〈実験No. 4～6〉

2軸押出機と1軸成形機を組合せた強混練型成形機の代わりに、2軸押し出し機又は1軸成形機のみを用いたこと以外は、実施例1と同様に行った。結果を表1～3に示す。

【実施例3】

【0060】

〈実験No. 7〉

金属回路と金属放熱板に銅板を用い、下記の方法で接合及び回路パターン形成したこと以外は、実施例1と同様に行った。結果を表3に示す。

【0061】

Ag8.5質量%、Cu1.0質量%、Zr2質量%、TiH3質量%からなる混合粉末と、外割で30質量%テルピネオールからなるペースト状混合液をAlN焼結体の両面に塗布し、その両面に3インチ×2インチ×0.02インチ厚の無酸素銅板を貼付け、それを14枚積層したものをカーボン治具にカーボンネジ締めにより設置を行った後、850°Cで2時間保持させてAlN焼結体を銅板で挟んだ接合体を作製した。接合体の一主面には所定の形状の回路パターンを、もう一方の主面には放熱板パターンを形成させるべく、UV硬化型レジストインクをスクリーン印刷した後、UVランプを照射させてレジスト膜を硬化させた。次いで、レジスト塗布した部分以外を塗化第2銅溶液でエッチングした後、フッ化アンモニウム水溶液にてレジスト剥離し、銅回路AlN基板を作製した。

【0062】

本発明の実施例は、シート密度が2.5 g/cm³以上、AlN焼結体の収縮率が1.2%以下、及び熱伝導率が170 W/mK以上であり、熱履歴衝撃試験後に、接合クラック及び基板クラックが発生せず、回路基板として高い信頼性が得られることが判る。

【0063】

〈使用材料〉

・無酸素銅板：住友金属鉱山伸銅株式会社製、商品名『3100系』（対応JIS番号）。

【図面の簡単な説明】

【0064】

【図1】本発明に係る押出成形機の説明図。

【図2】本発明に係る2軸押出機および1軸成形機のスクリューの説明図。

【図3】本発明に係るセラミック回路基板の説明図。

【符号の説明】

【0065】

【図1】

- 1 粉末供給口
- 2 液体供給口
- 3 2軸押出機
- 4 ベント口
- 5 ストランドダイス
- 6 真空室
- 7 ニーダー
- 8 シートダイス
- 9 1軸成形機

【0066】

【図2】

- 1 混練スクリュー
- 2 搬送スクリュー

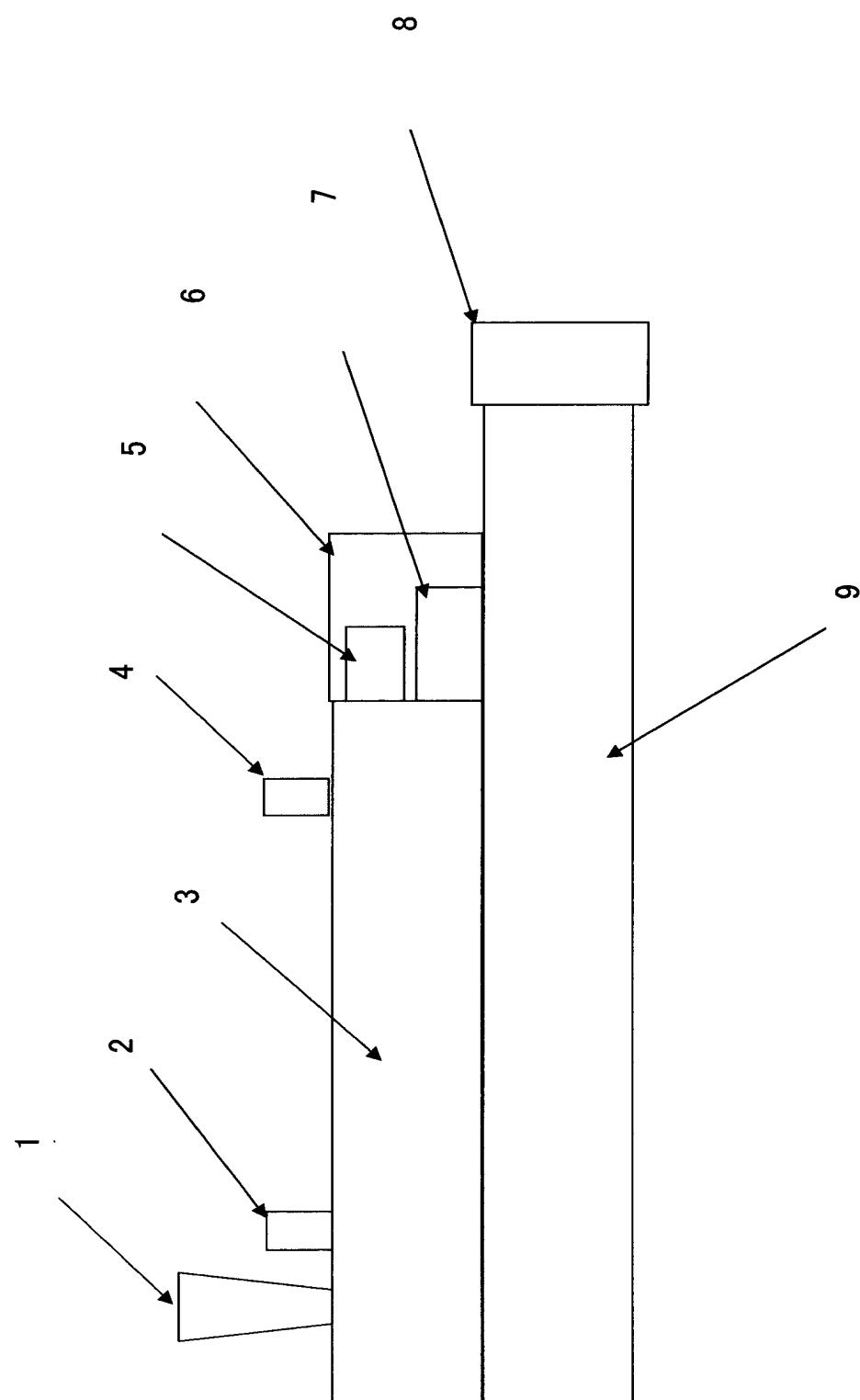
【0067】

【図3】

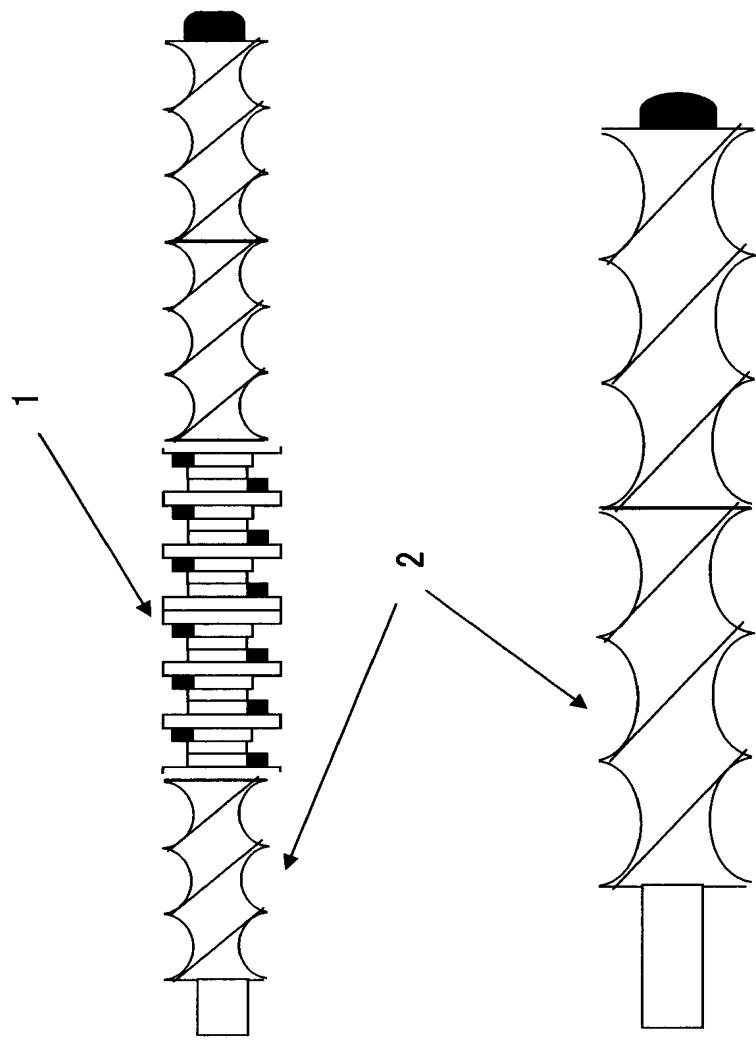
- 1 回路側金属板
- 2 放熱側金属板
- 3 AlN基板

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



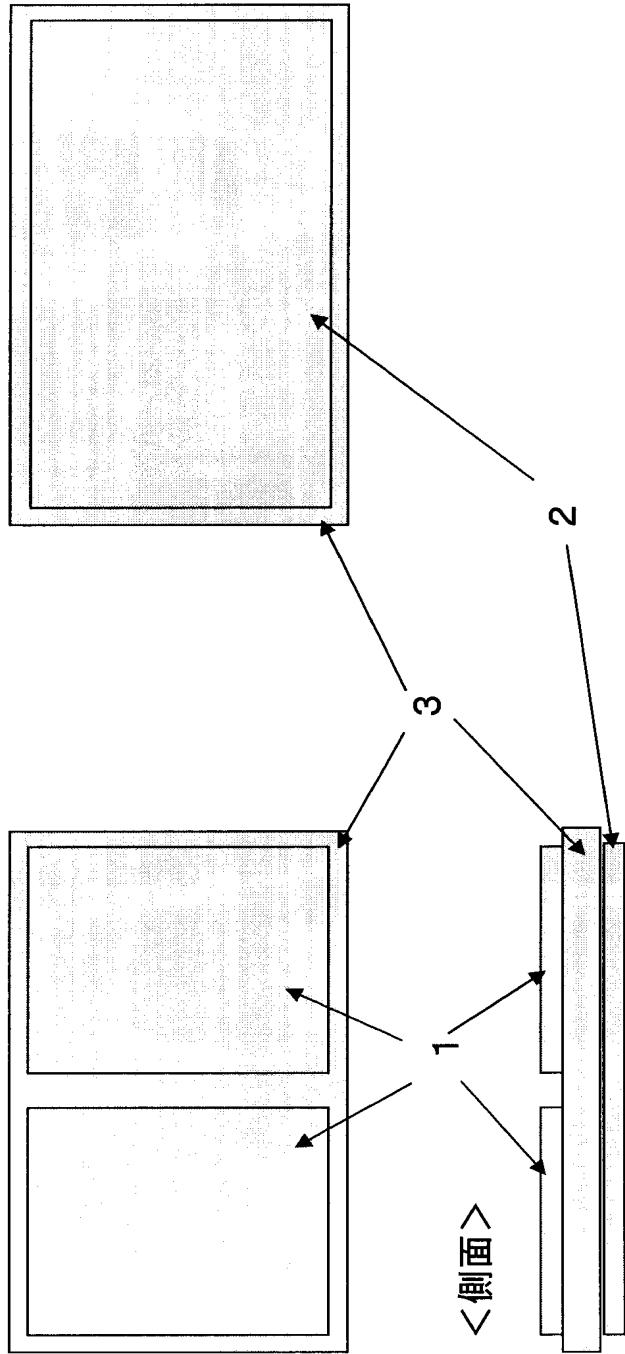
<2軸押出機スクリュ>

<1軸成形機スクリュ>

【図3】

<放熱板面側>

<回路面側>



【書類名】要約書

【要約】

【課題】

従来の押出成形によるセラミックシートの製造方法は、原料の顆粒化（顆粒工程）および練土の均一化（混練および寝かせ工程）を必要とするリードタイムの長い生産方法である。さらに、この練土の均一化が不十分であると、グリーンシートの密度ムラが生じ、焼成後のセラミックス焼結体に変形や反りが発生するため、回路パターン印刷不良や金属回路板・放熱板との接合不良が生じるという課題があった。

【解決手段】

強混練性能を有した2軸押出機と、成形安定性を有した1軸成形機を組み合わせた押出成形機を使用することにより、従来と同等もしくはそれ以上の品質が得られ、しかも生産効率の良好なセラミックシートの製造方法、及びそれを用いたセラミックス基板を製造する。

【選択図】なし

出願人履歴

0 0 0 0 0 3 2 9 6

20001204

住所変更

東京都千代田区有楽町1丁目4番1号

電気化学工業株式会社